

## ⑪ 公開特許公報 (A) 昭61-197559

⑫ Int.Cl.

C 07 D 231/12  
A 01 N 47/30  
C 07 D 231/16

識別記号

序内整理番号

⑬ 公開 昭和61年(1986)9月1日

7166-4C

E-8519-4H

7166-4C 審査請求 未請求 発明の数 2 (全11頁)

⑭ 発明の名称 フェニル尿素誘導体及びこれを含有する除草剤

⑮ 特願 昭60-37127

⑯ 出願 昭60(1985)2月26日

⑰ 発明者 郷 敦 茨城県稲敷郡阿見町大字若栗1315番地 三菱油化株式会社  
中央研究所内

⑱ 発明者 白井 義浩 茨城県稲敷郡阿見町大字若栗1315番地 三菱油化株式会社  
中央研究所内

⑲ 発明者 遠藤 恵次 茨城県稲敷郡阿見町大字若栗1315番地 三菱油化株式会社  
中央研究所内

⑳ 発明者 引戸 充 茨城県稲敷郡阿見町大字若栗1315番地 三菱油化株式会社  
中央研究所内

㉑ 出願人 三菱油化株式会社 東京都千代田区丸の内2丁目5番2号

㉒ 代理人 弁理士 古川 秀利 外1名

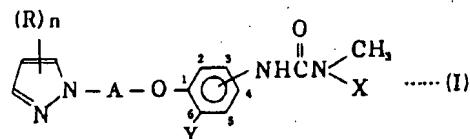
## 明細書

## 1. 発明の名称

フェニル尿素誘導体及びこれを含有する除草剤

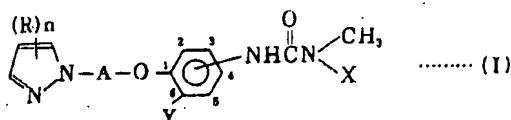
## 2. 特許請求の範囲

## (1) 一般式(I)、



(式中、Rは低級アルキル基、ハロゲン原子、トリフルオロメチル基又はフェニル基を、nは0~3の整数を、Xはメチル基、メトキシ基又は水素原子を、Yは水素原子、ハロゲン原子又はトリフルオロメチル基を、Aは-CH<sub>2</sub>-、-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-又は-CH(CH<sub>3</sub>)ーをそれ示し、かつ尿素基の結合位置はフェニル環の3位又は4位である)  
で表わされるフェニル尿素誘導体を含有する除草剤。

## (2) 一般式(I)、

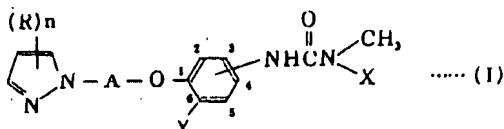


(式中、Rは低級アルキル基、ハロゲン原子、トリフルオロメチル基又はフェニル基を、nは0~3の整数を、Xはメチル基、メトキシ基又は水素原子を、Yは水素原子、ハロゲン原子又はトリフルオロメチル基を、Aは-CH<sub>2</sub>-、-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-又は-CH(CH<sub>3</sub>)ーをそれ示し、かつ尿素基の結合位置はフェニル環の3位又は4位である)

## 3. 発明の詳細な説明

技術分野

本発明は、下記一般式(I)、



(式中、Rは低級アルキル基、ハロゲン原子、トリフルオロメチル基又はフェニル基を、nは0～3の整数を、Xはメチル基、メトキシ基又は水素原子を、Yは水素原子、ハロゲン原子又はトリフルオロメチル基を、Aは-CH<sub>2</sub>-、-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-又は-CH(CH<sub>3</sub>)-をそれぞれ示し、かつ尿素基の結合位置はフェニル環の3位又は4位である)で表わされる新規なビラゾール-1-イルーアルコキシフェニル尿素誘導体及びこれを含有する除草剤に関するものである。

本発明の上記一般式(I)で表わされる新規なフェニル尿素誘導体は、雑草に対する除草活性を有しており、雑草の発芽前後及び生育期においてその効果を発揮し、特に雑草の生育期処理において最も強力な除草活性を示す、と同時に本発明の除草剤は、作物に対して優れた選択性となるものである。

#### 先行技術

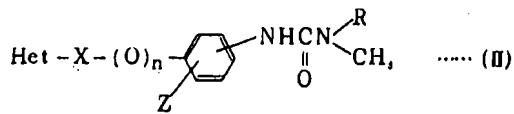
複素環アルコキシフェニル尿素誘導体については、特開昭58-113177号公報に五島謙復

綿、ピート等の重要な作物を雑草害から守り、增收をはかる為に除草剤を使用することは欠くことができない。そしてこれらの除草剤は、発芽前に施用される土壤処理型のものに比較して、発芽後に草種および草量に対応して施用でき、薬剤の少量化が期待できる茎葉接触型のものが望まれている。

しかしながら、茎葉接触型の除草剤には作物も同様に接触するので、極めて高い選択性を要求される。従つて土壤処理型のものは多く開発されているが、茎葉接触型のものは極めて少い状況にある。

現在茎葉接触兼土壤処理型の除草剤として、フェニル尿素系のN'-4-クロロフェニル-N,N-ジメチル尿素(商品名:「モニユロン」)、N'-3,4-ジクロロフェニル-N-メチル-N-メトキシ尿素(商品名:「リニユロン」)等が知られている。これらは強い除草活性を有しているが、その作用機構が光合成阻害作用にあるので、動物に対して毒性が低いという長所を有している反面、

土壤としてオキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、ピラゾール、イミダゾール等が示されている。即ち下記式(II)に示される尿素誘導体である。



該特許においてHetがピラゾールの誘導体である場合においては、

- (1) ピラゾール環の4位で結合しているもののみであり、
- (2) nはゼロ、即ちピラゾール環4位とフェニル尿素部は酸素原子を介する事なく結合している。即ち、ピラゾール環の1位で結合し、且つ酸素原子を介する尿素誘導体に関しては、何らの記載も示唆もない。また化合物の特性である除草活性についての記載はなく、本発明者らの試験例(表5 比較例1)から明らかな様に、その除草活性は皆無である。

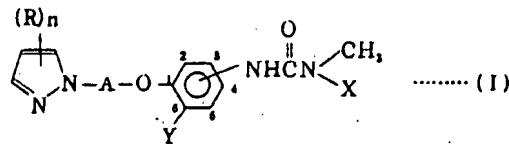
一方、近年トウモロコシ、小麦、大豆、イネ、

作物に対しても薬害を示す場合が多い。

#### 発明の要旨

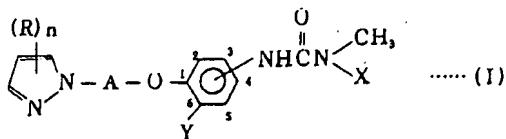
本発明者らは、上述のフェニル尿素系除草剤の技術的課題を克服し、施用量が少なく、殺草スペクトラムが広く且つ主要作物に発芽後に散布しても良好な選択性を有するフェニル尿素系除草剤を開発すべく鋭意研究努力を重ねた結果、前記一般式(I)で表わされるビラゾール-1-イルーアルコキシフェニル尿素系化合物の創製に成功し、その除草活性が、この目的を完全に達成することを確認し、本発明を完成するに至つた。

即ち、本発明は第一に、一般式(I)、



(式中、Rは低級アルキル基、ハロゲン原子、トリフルオロメチル基又はフェニル基を、nは0～3の整数を、Xはメチル基、メトキシ基又は水素原子を、Yは水素原子、ハロゲン原子又はトリフ

ルオロメチル基を、Aは $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ 又は $-\text{CH}(\text{CH}_3)-$ をそれぞれ示し、かつ尿素基の結合位置はフェニル環の3位又は4位である)で表わされるフェニル尿素誘導体を、第二に、一般式(I)、

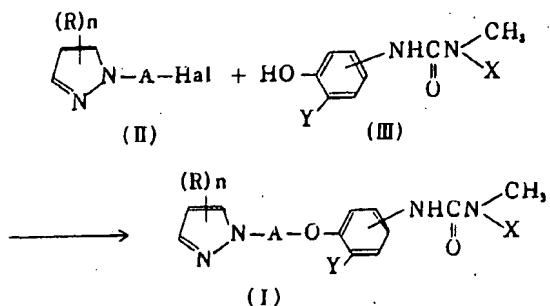


(式中、Rは低級アルキル基、ハログン原子、トリフルオロメチル基又はフェニル基を、nは0～3の整数を、Xはメチル基、メトキシ基又は水素原子を、Yは水素原子、ハログン原子又はトリフルオロメチル基を、Aは $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{CH}_2\text{CH}_2-$ 又は $-\text{CH}(\text{CH}_3)-$ をそれぞれ示し、かつ尿素基の結合位置はフェニル環の3位又は4位である)で表わされるフェニル尿素誘導体を含有する除草剤を提供するものである。

#### 発明の効果

本発明の上記一般式(I)で表わされるフェニル

一般式(I)で表わされる本発明化合物は、例えば下記に示す方法等により製造することができる。



即ちピラゾール-1-イル-アルキルハライド(II)と、N-ヒドロキシフェニル-N'-メチル尿素誘導体(III)とを有機溶媒中、もしくは水／有機溶媒の2層系中で、好ましくは脱ハログン化水素剤の存在下に反応させることにより製造することができる。

この反応は、化合物(III)に対して化合物(II)を1～2モル当量、好ましくは1～1.2モル当量用いて、冰冷下ないし溶媒の選流温度で、好ましくは室温～100°C付近の温度で、1～20時間で行われる。

尿素誘導体は、文献未記載の新規な化合物である。

本発明の上記一般式(I)で表わされるフェニル尿素誘導体は、ピラゾール環の1位の窒素原子にアルコキシフェニル尿素部が結合していることが特徴であり、その構造的特徴によつてこのフェニル尿素誘導体を含有する除草剤には次のような特性が発揮される。即ち本発明の除草剤はトウモロコシ、小麦等に対して高度の選択性を有し、殺草スペクトルが広く、そして通常の除草剤に比較して極めて少い使用量でその除草活性を充分発揮するという従来の技術からは予想できない優れた特性を有する除草剤である。

#### 発明の具体的説明

本発明の一般式(I)で表わされるフェニル尿素誘導体において、低級とは炭素数1～5を示し、低級アルキル基としては例えばメチル、エチル、n-ブロビル、i-ブロビル、n-ブチル、i-ブチル、s-ブチル、t-ブチル、n-ベンチル等が挙げられる。ハログン原子とは弗素、塩素、臭素もしくは沃素原子である。

この反応に用いられる溶媒としては、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類；ジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭化水素等のハログン化炭化水素；酢酸エチル、アセトン、アセトニトリル、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、エタノール等の有機溶媒が用いられる。

用いられる脱ハログン化水素剤としては、たとえばビリジン、トリエチルアミン、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、ナトリウムエチレート、水素化ナトリウム等が用いられる。脱ハログン化水素剤を化合物(III)に対して1～3当量、好ましくは1～1.5当量用いることにより、反応を高収率で行うことができる。

又、反応を2層系中で行う場合は、テトラメチルアンモニウムプロマイド、テトラブチルアンモニウムプロマイド、ベンジルトリブチルアンモニウムプロマイド等の四級アンモニウム塩、テトラフェニルホスホニウムプロマイド等の四級ホスホ

ニウム塩等の相間移動触媒を化合物(Ⅲ)に対して1～50wt%、好ましくは5～30wt%用いて行われる。

反応終了後は、反応混合物を例えば再結晶、カラムクロマト等の常法に従つて処理することにより、本発明化合物を単離することができる。

次に本発明化合物の合成例について述べる。

実施例1 N-(3-クロロ-4-(1-ビラゾリルメトキシ)フェニル)-N,N'-ジメチル尿素(No.8の化合物)

N-(3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル)-N,N'-ジメチル尿素2.15g(0.01モル)をジクロルメタン15mlに懸濁させ、氷冷攪拌下、4.0%水酸化ナトリウム水溶液3g、続いてベンジルトリブチルアンモニウムプロマイド0.3gを添加する。その後これに更にノークロロメチルビラゾール塩酸塩1.84g(0.012モル)を、約10分間で少しづつ添加する。この後更に室温で2.5時間攪拌した後、反応液を30mlの氷水にあけ、攪拌し、析出した結晶を吸引濾過した。この

(トリフルオロメチル)-1-ビラゾリルメトキシ)フェニル)-N,N'-ジメチル尿素(No.19の化合物)

水素化ナトリウム(油性60%)0.35g(8.7ミリモル)を添加したジメチルホルムアミド10mlの懸濁液に、N-(3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル)-N,N'-ジメチル尿素1.56g(7.3ミリモル)を少しづつ加え、その後室温で20分間攪拌する。この反応液に氷冷攪拌下、1-クロロメチル-3,5-ビス(トリフルオロメチル)ビラゾール2.2g(8.7ミリモル)を20分間で滴下する。その後室温で更に15時間攪拌する。反応後、この反応液を氷水15mlに攪拌しながらあけ、析出した結晶を吸引濾過し、ヘキサンで洗浄することにより白色結晶0.81gが得られた(収率25.9%)。

この結晶を実施例1と同様に分析し以下の結果を得た。

元素分析：測定値

N(13.01%)、C(41.83%)、H(3.04%)、

結晶を風乾した後メタノールで再結晶することにより、融点163.5～164.0℃の白色結晶1.17gが得られた(収率40%)。

この結晶を分析し以下の結果を得た。

元素分析：測定値

N(19.09%)、C(53.08%)、H(5.14%)

理論値(C<sub>13</sub>H<sub>15</sub>C<sub>6</sub>N<sub>4</sub>O<sub>2</sub>として)

N(19.01%)、C(52.98%)、H(5.13%)

n m r (CDCl<sub>3</sub>中) : δ (ppm)

3.00(6H, s)、5.95(2H, s)、6.40(1H, s)、

6.35(1H, d)、7.60(2H, d)、6.80～7.60

(3H, m)

I R (KBr) cm<sup>-1</sup> :

3350, 1660

以上の分析結果から得られた結晶は、本発明の新規な化合物であるN-(3-クロロ-4-(1-ビラゾリルメトキシ)フェニル)-N,N'-ジメチル尿素(化合物No.8の化合物)であることが判つた。

実施例2 N-(3-クロロ-4-(3,5-ビス

理論値(C<sub>18</sub>H<sub>13</sub>C<sub>6</sub>F<sub>6</sub>N<sub>4</sub>O<sub>2</sub>)

N(13.01%)、C(41.77%)、H(3.06%)

NMR (CDCl<sub>3</sub>中) δ (ppm) :

3.00(6H, s)、6.10(2H, s)、6.40(1H, s)、

7.00(1H, s)、6.80～7.60(3H, m)

I R (KBr) cm<sup>-1</sup> :

3270, 1650

以上の分析結果から得られた結晶は、本発明の新規な化合物であるN-(3-クロロ-4-(3,5-ビス(トリフルオロメチル)-1-ビラゾリルメトキシ)フェニル)-N,N'-ジメチル尿素(化合物No.19の化合物)であることが判つた。

実施例3 N-(3-クロロ-4-(3(又は5)-メチル-5(又は3)-トリフルオロメチル-1-ビラゾリルメトキシ)フェニル)-N,N'-ジメチル尿素(No.16の化合物)

ノークロロメチルビラゾール塩酸塩の代りにノークロルメチル-3(又は5)-メチル-5(又は3)-トリフルオロメチルビラゾールを使用する以外は実施例1に準じて反応を実施した。得ら

れた粗結晶をトルエンで再結晶することにより、融点 119.0 ~ 119.5 °C の白色結晶 1.77 g が得られた(收率 47%)。

この結晶を分析し以下の結果を得た。

元素分析：測定値

N(14.70%)、C(48.03%)、H(4.32%)

理論値 (C<sub>15</sub>H<sub>14</sub>C<sub>2</sub>F<sub>5</sub>N<sub>4</sub>O<sub>2</sub>)

N(14.87%)、C(47.82%)、H(4.28%)

NMR (CDCl<sub>3</sub>, 中) δ (ppm) :

2.35(3H, s)、3.00(6H, s)、5.90(2H, s)、  
6.30(1H, s)、6.35(1H, s)、6.80~7.60  
(3H, m)

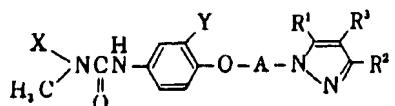
IR (KBr) cm<sup>-1</sup>:

3270, 1650

以上の分析結果から得られた結晶は、本発明の新規な化合物である N-(3-クロロ-4-(3(又は5)-メチル-5(又は3)-トリフルオロメチル-ノーピラゾリルメトキシ)フェニル)-N,N'-ジメチル尿素(化合物 No. 16 の化合物)であることが判つた。

上述の実施例と同様な手法で合成された本発明のフェニル尿素誘導体を表1及び表2に示す。

表 1

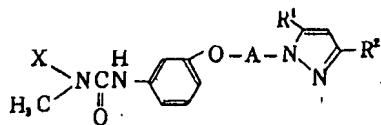


化合物 No.	X	Y	A	R <sup>1</sup> , R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	融点 (°C)
1	CH <sub>3</sub>	H	-CH <sub>2</sub> -	H, H	H	141.0~142.0
2	OCH <sub>3</sub>	/	/	CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	/	油状物
3	CH <sub>3</sub>	/	/	/	/	
4	CH <sub>3</sub>	/	/	CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	134.0~135.0
5	H	/	/	/	/	159.5~160.0
6	CH <sub>3</sub>	/	/	CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	
7	CH <sub>3</sub>	/	/	H, CF <sub>3</sub>	/	
8	CH <sub>3</sub>	CF	/	H, H	/	163.5~164.0
9	OCH <sub>3</sub>	/	/	/	/	
10	H	/	/	/	/	
11	CH <sub>3</sub>	/	/	H, CH <sub>3</sub>	/	135.0~135.5

化合物 No.	X	Y	A	R <sup>1</sup> , R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	融点 (°C)
12	OCH <sub>3</sub>	CF	-CH <sub>2</sub> -	H, CH <sub>3</sub>	H	67.5~69.0
13	CH <sub>3</sub>	/	/	CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	/	121.0~122.0
14	OCH <sub>3</sub>	/	/	/	/	
15	H	/	/	/	/	
16	CH <sub>3</sub>	/	/	CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	119.0~119.5
17	OCH <sub>3</sub>	/	/	/	/	80.0~81.0
18	H	/	/	/	/	165.5~166.0
19	CH <sub>3</sub>	/	/	CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	116.0~117.0
20	OCH <sub>3</sub>	/	/	/	/	
21	H	/	/	/	/	
22	CH <sub>3</sub>	/	/	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	/	121.0~122.0
23	/	/	/	i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> , i-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub>	/	140.5~141.5
24	/	/	/	S-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> , S-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	/	
25	/	/	/	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> , t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	/	
26	/	/	/	CH <sub>3</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	/	

化合物 No.	X	Y	A	R <sup>1</sup> , R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	融点 (°C)
27	CH <sub>3</sub>	CF	-CH <sub>2</sub> -	CH <sub>3</sub> , i-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	131.5~132.5
28	/	/	/	CH <sub>3</sub> , C <sub>6</sub> H <sub>5</sub>	/	157.0~161.5
29	/	/	/	H, CF <sub>3</sub>	/	
30	OCH <sub>3</sub>	/	/	/	/	
31	H	/	/	/	/	
32	CH <sub>3</sub>	/	-CH <sub>2</sub> -CH <sub>2</sub> -	H, H	/	154.0~155.0
33	/	/	/	H, CH <sub>3</sub>	/	
34	/	/	/	CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	/	190.0~191.5
35	/	/	/	CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	163.5~164.5
36	/	/	/	CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	120.0~121.0
37	/	/	/	H, CF <sub>3</sub>	/	
38	/	H	/	CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	
39	/	/	/	CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	/	
40	/	CF	-CA(CH <sub>3</sub> )-	H, H	/	215.5~216.5
41	/	/	/	CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	/	
42	/	/	/	CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	/	159.5~161.5

表 2



化合物 名	X	Y	A	R <sup>1</sup> , R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	融点 (℃)
43	CH <sub>3</sub>	C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	-CH <sub>2</sub> -(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> -	CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	H	
44				H, CF <sub>3</sub>		
45		CF <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -	H, H		173.0-174.0
46				H, CF <sub>3</sub>		
47				CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>		
48				CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>		
49				CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>		
50		C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>		H, H	CH <sub>3</sub>	122.5-125.5
51				CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	HN	144.0-144.5
52			-CH <sub>2</sub> - CH <sub>2</sub> -	t-Bu, t-Bu, Bu	H	159.0-160.0

化合物 名	X	A	R <sup>1</sup> , R <sup>2</sup>	融点 (℃)
53	CH <sub>3</sub>	-CH <sub>2</sub> -	H, H	141.0-142.5
54	H			123.0-125.0
55	CH <sub>3</sub>		CH <sub>3</sub> , CH <sub>3</sub>	
56			CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	124.0-125.5
57		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -		
58			H, CF <sub>3</sub>	
59	H	-CH <sub>2</sub> -	CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	134.5-135.0
60	CH <sub>3</sub>		CF <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	
61		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -		
62		-CH(CH <sub>3</sub> )-		
63		-CH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> -	CH <sub>3</sub> , CF <sub>3</sub>	149.5-150.0

本発明化合物は雑草に対する除草活性を有しており、雑草の発芽前後及び生育期においてその効果を發揮するものであるが、特に雑草の生育期処理において最も強力な除草活性を発揮するものである。本発明の除草剤は、イネ科雑草例えはノヒエ、メヒシバ、エノコログサ、オヒシバ、ジョンソングラス、アキノメヒシバ、スズメノテンボウ、スズメノカタビラ、スズメノヒエ、カモジグサ等、あるいは広葉雑草例えはアオヒユ、タデ、ソバカラ、スペリヒユ、ミミナグサ、ナズナ、イヌガラシ、ワルナスピ、イヌホウズキ、チヨウセンアサガオ、マルバアサガオ、オナモミ、カタバミ、アメリカキンコジカ、センダンングサ、イチビ、ハコベ、イヌノフグリ、ブタクサ、ハキダメギク等に有効でありこれらの中でも特に広葉雑草に卓効を示す。

また本発明化合物は作物に対しての薬害が無く、特にトウモロコシ、コムギ、イネ、芝生等の栽培地区の除草に有用である。

従つて本発明の除草剤は、畑地、水田、果樹園、

芝生、森林苗圃および非農耕地等に適用可能である。

本発明化合物を除草が必要とされる用地に施用する場合は、化合物をそのまま散布する事も可能であるが、通常の場合各種粗体もしくは希釈剤と混合して、場合によつては補助剤を添加して常法により水和剤、乳剤、粉剤、粒剤等の製剤形態に加工して使用すれば更に良好な結果を得ることができる。

上記粗体若しくは希釈剤としては、一般に使用される固体乃至は液体の粗体が用いられる。固体粗体としてはタルク、ペントナイト、クレー、カオリイン、ケイソウ土、ホワイトカーボン等が挙げられ、液体粗体としては水、アルコール、ジオキサン、アセトン、シクロヘキサン、シクロヘキサン、ジメチルホルムアミド、ベンゼン、キシレン、トルエン等が挙げられる。補助剤としてはアルキル硫酸エステル、アルキル硫酸塩類、ポリオキシエチレングリコールエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル、ポリオキシ

エチレンソルビタンモノアルキレート等の界面活性剤、又はカルボキシメチセルロース、アルギン酸ソーダ、ポリビニルアルコール、アラビアゴム等の各種補助剤が用いられる。

この様にして得られた各種製剤形に於ける本発明化合物有効成分含有率は製剤形により種々変化するものであるが、0.1～99wt%好ましくは1～80wt%であり、例えば、水和剤においては5～80wt%、乳剤においては10～60wt%、粒剤において1～15wt%で用いられるのが望ましい。

本発明化合物の使用量は適用場面、使用方法、対象草種の種類、生育段階及び使用時期により適宜薬量を調節することが可能だが、概ね、有効成分としてha当たり0.01～1.0kg、好ましくは0.1～4kgである。

本発明化合物は他の殺菌剤、殺虫剤、殺ダニ剤、除草剤、植物生育調節剤等を適宜混合すれば省力防除剤とし使用することも可能である。特に除草剤と混合使用することにより、使用薬量を減少さ

せ又省力化をもたらすのみならず、両薬剤の共作用による殺草スペクトラムの拡大並びに相乗作用による一層高い効果も期待できる。

次に本発明化合物に関する製剤例実施例及び試験例によつて更に具体的に本発明を説明する。

#### 製剤例1 水和剤

化合物A 1.9	4.0 重量部
タルク	5.0 重量部
ポリオキシエチレンアルキルアリールエーテル系界面活性剤	1.0 重量部

以上を均一に粉碎混合して水和剤を得る。

#### 製剤例2 乳剤

化合物A 1.6	2.0 重量部
キシレン	5.5 重量部
ジメチルホルムアミド	1.5 重量部
ポリオキシエチレンフェニルエーテル系界面活性剤	1.0 重量部

以上を混合、溶解して乳剤を得る。

#### 製剤例3 粒剤

化合物A 5.0	5 重量部
----------	-------

ペントナイト	8.9 重量部
リグニンスルホン酸ソーダ	6 重量部

以上を均一に粉碎混合し、少量の水を加えて攪拌混合捏和後、造粒乾燥し粒剤を得る。

#### 試験例1 土壌処理(発芽前処理)

角型ポット(13cm×13cm)に化成肥料を含む畑地土壌をつめ、表3に示す各雑草種子を各ポットに一定量播種した後、製剤例1に準じて調剤した本発明化合物の水和剤の水希釈液を、所定の有効成分量になるように土壌表面に均一に散布した。薬剤散布してから20日後に各雑草の除草効果を下記の基準に従つて判別した。その結果を表3に示した。

#### 除草効果の判定基準

除草効果	無処理区に対する残草率(%)
5	0～1 未梢
4	1～20
3	20～40
2	40～60
1	60～80

表 3

化合物 A	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ュ	タ デ	イ チ ビ
1	1.0	5	5	5	5	4
	3	2	2	5	4	4
	1	0	0	3	3	1
2	1.0	5	5	5	5	5
	3	2	2	4	4	4
	1	0	0	0	0	2
4	1.0	5	5	5	5	5
	3	3	4	4	4	4
	1	0	1	0	0	2
5	1.0	3	4	5	5	5
	3	0	0	2	1	4
	1	0	0	0	0	0
8	1.0	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	4	4	2	2

化合物 番	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
11	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	2	2	3	2	1
12	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	2	2	3	2	1
13	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	2	2	4	4	4
16	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	3	4	5	5	4.5
17	10	5	5	5	5	5
	3	4.5	4	5	5	5
	1	3	3	4	4	4
18	10	5	5	5	5	5
	3	3	4	5	5	5
	1	1	3	4	4	4

化合物 番	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
19	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	5	5	5	4.5
22	10	5	5	5	5	5
	3	3	4	5	5	5
	1	0	1	4	2	3
28	10	5	4	5	5	5
	3	2	1	3	2	2
	1	0	0	2	1	0
32	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	2	2	4.5	4.5	5
34	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	5	5	3
	1	0	0	3	3	1
40	10	1	1	5	5	5
	3	0	0	5	5	5
	1	0	0	3	3	4

化合物 番	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
42	10	5	5	5	5	5
	3	3	3	5	5	5
	1	1	1	4	4	4
45	10	4	4	5	5	5
	3	2	2	1	1	1
	1	0	0	0	0	0
50	10	5	5	5	5	5
	3	1	1	2	5	3
	1	0	0	0	1	2
51	10	5	5	4	5	5
	3	3	2	0	1	2
	1	0	0	0	0	0
53	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	5	4	4
	1	0	0	4	3	3
54	10	5	5	5	2	5
	3	1	1	1	0	1
	1	0	0	0	0	0

化合物 番	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
56	10	5	5	5	5	5
	3	1	1	1	4	1
	1	0	0	0	1	0
59	10	4	4	5	5	5
	3	1	1	2	2	3
	1	0	0	0	0	0

## 試験例2 基葉処理(生育期処理)

角型ポット(13cm×13cm)に化成肥料を含む畑地土壌をつめ、表4に示す各雑草種子を各ポットに一定量播種した。播種10日後に製剤例1に準じて調剤した本発明化合物の水和剤を展着剤を含む水で希釈し、所定の有効成分量になるよう植物の上から基葉部全面に均一に噴霧処理した。

この時期の各雑草の生育は草種により異なるが1~2葉期であつた。薬剤散布してから20日後に各雑草に対する除草効果を試験例1の基準に従つて判別した。その結果を表4に示した。

(以下余白)

表4

化合物 No.	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
1	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	5	5	5
	1	1	1	4.5	4	5
2	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	4.5	4	5
	1	1	1	4	3	4
4	10	5	5	5	5	5
	3	3	4	5	5	5
	1	2	2	5	5	5
5	10	5	5	5	5	5
	3	1	1	5	5	5
	1	0	0	5	5	5
8	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	4	5	5	5
11	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	4	5	5	5
12	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	3	3	5	5	5

化合物 No.	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
13	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	4	5	5	5
16	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	5	5	5	5
17	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	3	4.5	5	5	5
18	10	5	5	5	5	5
	3	3	4.5	5	5	5
	1	1	3	5	5	5
19	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	5	5	5	5	5
22	10	5	5	5	5	5
	3	4	4.5	5	5	5
	1	2	3	5	4.5	5
28	10	4	5	5	5	5
	3	1	3	5	5	5
	1	1	2	5	4	4

化合物 No.	有効成分量 (kg/ha)	ノ ビ エ	メ ヒ シ バ	ア オ ビ ユ	タ デ	イ チ ビ
32	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	4	5	5	5	5
34	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	5	5	5
	1	1	1	3	4	3
40	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	5	5	5
	1	0	0	3	3	4
42	10	5	5	5	5	5
	3	4	4	5	5	5
	1	1	3	5	5	4.5
45	10	5	5	5	5	5
	3	2	2	4.5	5	5
	1	0	0	2	2	3
50	10	5	5	5	5	5
	3	5	5	5	5	5
	1	1	3	4	4	5

### 試驗例 3 茎葉處理（生育期處理）

角形ポット(30cm×30cm)に化成肥料を含む畑地土壌をつめ、表5に示す各雑草種子及び作物種子を各ポットに一定量まいた。播種後14日後に製剤例1に準じて調剤した本発明化合物又は特開昭58-113177号公報に記載された化合物No10のN-(4-(1,3,5-トリメチル-4-ピラゾリルメチル)フェニル)-N'-メチル-N'-メトキシ尿素の水和剤又はデュポン社製フェニル尿素系除草剤「リニユロン」(水和剤)を、成長剤を含む水で希釈し所定の有効成分量になるように、植物の上から茎葉部全面に均一に噴霧処理した。

この時期の各植物の生育は草種により異なるが、  
2～4葉期であつた。薬剤散布してから20日後  
に、各雑草種の除草効果及び作物の栄養状況を下  
記に従つて判別した。その結果を表5に示した。

### 除草効果 無処理に対する残草率(%) 染害程度

5 0~1 未満 ×：枯死

1~20 · 大害：卅

3	20 ~ 40 未満	廿：中害
2	40 ~ 60 *	十：小害
1	60 ~ 80 *	土：僅小害
0	80 ~ 100 *	一：無害

表 5

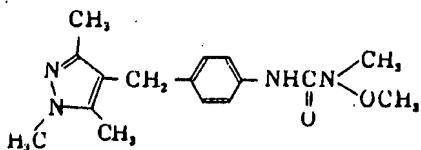
化合物	有効成分量 (kg/ha)	除草効果							薬害			
		ノ ビ	メ シ	ア ビ	タ ユ	イ デ	マル バ	オ サ	ト モ	コ ロ	コ ギ	イ バ
A	2	5	5	5	5	5	5	5	—	—	—	—
	1	2	4.5	5	5	5	5	5	—	—	—	—
	0.5	1	3	5	5	5	5	5	—	—	—	—
	0.25	1	1	5	5	5	3	4	—	—	—	—
	0.12	0	0	4.5	4.5	4.5	0	0	—	—	—	—
B	2	2	4	5	5	5	5	5	—	—	—	—
	1	1	3	5	5	5	5	5	—	—	—	—
	0.5	0	0	5	5	5	4.5	4	—	—	—	—
	0.25	0	0	5	5	5	1	1	—	—	—	—
	0.12	0	0	4.5	5	4.5	0	0	—	—	—	—

化合物	有效成分量 (kg/ha)	除草効果							葉害		
		ノ ビ ヒ シ エ バ ユ デ タ オ チ サ ガ オ ビ アル ア サ ガ オ オ ナ ア モ モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	メ シ ビ シ エ バ ユ デ タ オ チ サ ガ オ ビ アル ア サ ガ オ オ ナ ア モ モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	ア オ チ サ ガ オ ビ アル ア サ ガ オ オ ナ ア モ モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	タ チ モ モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	イ モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	マル ア モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	オ モ コ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ	トウ モ ロ コ モ シ ギ トウ モ ロ コ モ シ ギ コ ム コ ネ イ バ		
8	2	4	4	5	5	5	5	5	-	-	-
	1	1	1	5	5	5	5	5	-	-	-
	0.5	0	0	5	5	5	3	3	-	-	-
	0.25	0	0	5	5	5	2	1	-	-	-
	0.12	0	0	4.5	5	4.5	0	0	-	-	-
1.1	2	5	5	5	5	5	5	5	-	-	-
	1	5	5	5	5	5	5	5	-	-	-
	0.5	4	4	5	5	5	5	5	-	-	-
	0.25	3	3	5	5	5	4.5	4.5	-	-	-
	0.12	1	1	4.5	5	5	3	3	-	-	-
16	2	5	5	5	5	5	5	5	-	-	-
	1	5	5	5	5	5	5	5	-	-	-
	0.5	4	4	5	5	5	5	5	-	-	-
	0.25	3	3	5	5	5	5	5	-	-	-
	0.12	1	1	5	5	5	4.5	4	-	-	-

化合物	有効成分量 (kg/ha)	除草効果					薬害						
		ノ ビ シ エ バ ユ デ ビ ア サ ガ オ チ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	メ オ シ バ ユ テ ビ ア サ ガ オ チ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	ア オ ビ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	タ ナ モ コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	イ ム コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	マル バ ア サ ガ オ チ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	オ ナ モ コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	ト ウ モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	コ ム コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	イ ラ イ シ ギ ネ パ	コ ラ イ シ ギ ネ パ	
19	2	5 5 5 5 5 5 5	5	土	-	土	-	-	-	-	-	-	-
	1	5 5 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.5	4 4 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.25	3 3 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.12	1 1 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
32	2	5 5 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	1	4 4 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.5	3 3 5 5 5 5 4	4	4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.25	1 1 5 5 5 5 1	1	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.12	0 0 4.5 4.5 4 0	0	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-
50	2	4 4 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	1	3 3 5 5 5 5 5	5	5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.5	2 2 5 5 5 5 3	3	3	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.25	0 0 5 5 5 1 0	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.12	0 0 4 4 4 0 0	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

化合物	有効成分量 (kg/ha)	除草効果					薬害						
		ノ ビ シ エ バ ユ デ ビ ア サ ガ オ チ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	メ オ シ バ ユ テ ビ ア サ ガ オ チ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	ア オ ビ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	タ ナ モ コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	イ ム コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	マル バ ア サ ガ オ チ ア モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	オ ナ モ コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	ト ウ モ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	コ ム コ ロ コ ミ シ ギ ネ パ	イ ラ イ シ ギ ネ パ		
比較例 1*	2	0 0 0 0 0	0 0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
比較例 2**	2	5 5 5 5 5	5 5	X X X	+	+	+	+	+	+	+	+	+
	1	5 5 5 5 5	5 5	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
	0.5	5 5 5 5 5	5 0	3 +	+ +	+ +	-	-	-	-	-	-	-
	0.25	4 4 5 5 5	5 0	0 0	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	0.12	1 1 4 4.5 4	4 0	0 0	-	-	-	-	-	-	-	-	-

\* 印：特開昭58-113177号公報に化合物  
M10として記載されている化合物  
(m.p. 150~151°C)



\*\* 印：デュポン社製フェニル尿素系除草剤  
(水和剤)「リニュロン」

特許出願人 三塗油化株式会社

代理人 弁理士 古川秀利

代理人 弁理士 長谷正久